

⑨ 日本国特許庁 (JP) ⑩ 特許出願公開
⑪ 公開特許公報 (A) 昭58—53167

⑫ Int. Cl.³
H 01 M 8/24

識別記号

厅内整理番号
7268—5H

⑬ 公開 昭和58年(1983)3月29日

発明の数 1
審査請求 未請求

(全 5 頁)

⑭ 燃料電池

⑮ 特 願 昭56—151387
⑯ 出 願 昭56(1981)9月26日
⑰ 発明者 関敏昭
東京都府中市東芝町1 東京芝浦
電気株式会社府中工場内
⑱ 発明者 桑原武
東京都府中市東芝町1 東京芝浦
電気株式会社府中工場内
⑲ 発明者 武知太一

⑳ 発明者 永田勉
岩槻市表慈恩寺1175—29
㉑ 発明者 伊藤光生
川口市西青木5—6—30
㉒ 出願人 東京芝浦電気株式会社
川崎市幸区堀川町72番地
㉓ 出願人 東芝ケミカル株式会社
東京都港区新橋三丁目3番9号
㉔ 代理人 弁理士 則近憲佑 外1名

明細書

1. 発明の名称 燃料電池

2. 専許請求の範囲

電解質を挟んで一对の電極を有し、各電極の背面にそれぞれ流体燃料及び流体酸化剤が流通している条件下で電気的エネルギーを出力する単位セルと、この単位セルを積層するにあたり、流体燃料流通路及び流体酸化剤流通路を有し、流体燃料と流体燃料の混合を防止し、かつ単位セルを電気的に接続する機能を有するインタコネクタとを備えた燃料電池において、前記インタコネクタを圓形レゾール型フェノール樹脂5～40重量%と、10～300μの人造グラファイト60～95重量%とを、混合、混練、成形してなることを特徴とする燃料電池。

3. 発明の詳細な説明

本発明は燃料電池に関するもので、特に流体燃料流通路と流体酸化剤流通路の為の溝を形成し、かつ集電の機能を有するインタコネクターの改良に関する。

従来、燃料の有しているエネルギーを直結電気的エネルギーに変換する装置として燃料電池が知られている。この燃料電池は通常、電解質を挟んで一对の多孔質電極を配置するとともに、一方の電極の背面に水素等の流体燃料を接触させ、また他方の電極の背面に酸素等の流体酸化剤を接触させ、このときに起る電気化学反応を利用して、上記電極間から電気エネルギーを取り出すようにしたものであり、前記燃料と酸化剤が供給されている限り高い変換効率で電気エネルギーを取り出すことができるものである。

ところで上記の原理に基づく、特にリン酸を電解質とした燃料電池の単位セルは通常第1図(a)又は(b)に示すように構成されており、またこの単位セルを複数個積層することによつて第2図に示すように燃料電池装置全体を構成している。

すなわち、第1図(a)において、単位セルは電解質を含浸したマトリックス1を境にして両側に多孔質で形成され触媒が付加されている電極2、3(通常炭素材から成る)を配置し、さらに両電

極2，3のマトリックス1の背面にそれぞれリブ4，5の付いたプレート6（一般はグラファイトと熱硬化性樹脂の混合接着体から構成される。以後インタコネクターと称する。）を配置している。上記インタコネクタ6の各電極2，3側に位置する面には、それぞれリブ4，5によつて互いに直交するような向きに溝7，8が複数本規則的に平行に設けてあり、これらの溝7，8にはそれぞれ流体燃料および流体酸化剤の流通路を構成する。またインタコネクタ6の反対側の面にも同様にリブ4，5によつて互いに直行するような向きに隣接する単位セルにおける液体燃料および流体酸化剤の流通路に供される溝7，8が形成されている。このようにマトリックス1、電極2，3およびインタコネクタ6を積層し、この状態でインタコネクタ6の各溝7，8の両端開口だけを残して各積層端面部を気密にシールして単位セルを構成している。

第1図のように構成された単位セルは複数個積層され、第2図に示すようにこの積層体の1つの

対向する端面の一方に燃料供給口9を有したマニホールド10と、他方に燃料排出口11とを有したマニホールド12とが当たがわれ、また、他の対向する端面に酸化剤供給口13を有したマニホールド14と他方に酸化剤排出口15を有したマニホールド16とが当たがわれ、これらマニホールド10，12，14，16がボルト等で締付けられて気密保持され、これによつて燃料電池装置17が構成されている。したがつて、この燃料電池装置17によると、燃料供給口9から流体燃料を供給すると、この燃料は各単位セルの流通路である複数の溝7を分流して多孔性の電極2の背面に接しながら流れ、その後燃料排出口11から排出される。また酸化剤供給口13から流体酸化剤を供給すると、この酸化剤は各単位セルの流通路である複数の溝8を分流して多孔性の電極3の背面に接しながら流れ、その後酸化剤排出口15から排出されることになる。流体燃料と流体酸化剤はそれぞれ複数によつて多孔性の電極2，3内に供給され燃料電池としての電気エネルギーを発生する。なお図

では出力端子は省略している。

ところで、このように構成された燃料電池においては、インタコネクターは電流方向の高い電気伝導性及び熱伝導性、すぐれた耐リン酸性、耐熱性、寸法安定性等が要求される。このため一般には、ノボラツク型フェノール樹脂に硬化剤としてヘキサメチレンテトラミンを使用し、天然の鱗片状あるいは土状のグラファイトを混合し成型したものが用いられていた。

また、燃料電池は高出力化、小型軽量化のために、190°～200°の高温で運転することが要求される。しかし、ノボラツク型フェノール樹脂に硬化剤としてヘキサメチレンテトラミンを使用したインタコネクターでは耐熱性に劣り必然的に使用温度に限界があり、150°以下で使用しなければならない。天然鱗片状のグラファイトを使用した場合は、その形状特性のために平面方向の特性は優れているが、インタコネクターとして必要な電流方向（厚み方向）の特性が低く、また厚み方向の寸法変化も大きく、ガス漏れの原因となり

やすくなっていた。また土状グラファイトを使用した場合は、固定炭素量が70～80重量%と少なく熱伝導性、電気伝導性が低く結果的に燃料電池の効率の低下の原因になつていた。このために190°～200°の高温状態で電気伝導性、熱伝導性、耐リン酸性、耐熱性、寸法安定性のすぐれたインタコネクターが求められていた。

本発明はこのような点に鑑みてなされたもので、その目的とするところは高温状態においても電気伝導性、熱伝導性、耐リン酸性、耐熱性、寸法安定性のすぐれたインタコネクターを有する燃料電池を提供することにある。

以下本発明の一実施例を図面を参照して説明する。

本発明における燃料電池の構造は第1図に示す従来一般の燃料電池と同様である。すなわち単位セルは電解質を含浸したマトリックス1を境にして両側に多孔質体で形成され触媒が付加されている電極2，3（通常炭素材から成る）を配置し、さらに両電極2，3のマトリックス1と背面にそ

特開昭58- 53167(3)

れぞれリブ4, 5の付いたプレート6(一般はグラファイトと熱硬化性樹脂の混合結晶体から構成される。以後インタコネクターと称する。)を配備している。上記インタコネクタ6の各電極2, 3側に位置する面には、それぞれリブ4, 5によつて互いに直交するような向きに溝7, 8が複数本規則的に平行に設けてあり、これらの溝7, 8にはそれぞれ流体燃料および流体酸化剤の流通路を構成する。またインタコネクタ6の反対側の面にも同様にリブ4, 5によつて互いに直行するような向きに隔壁する単位セルにおける流体燃料および流体酸化剤の流通路に供される溝7, 8が形成されている。このようにマトリックス1、電極2, 3およびインタコネクタ6を積層し、この状態でインタコネクタ6の各溝7, 8の両端開口だけを残して各種端面部を気密にシールして単位セルを構成している。

本発明者らは種々検討した結果固形レゾール型フェノール樹脂と10μ～300μの人造グラファイトとを混合、混練、成形して得られるインタ

コネクター用フェノール樹脂組成物は耐リソ酸性がすぐれ、それらの最適割合の組成物は熱伝導性電気伝導性、耐リソ酸性、寸法安定性、耐熱性がすぐれている事を見出した。

即ち、本発明の特徴は固形レゾール型フェノール樹脂5～40重量%、10μ～300μの人造グラファイト60～95重量%とを混合、混練、成形してなるインタコネクタ用フェノール樹脂組成物を用いることである。

本発明において使用する固形レゾール型フェノール樹脂は未反応フェノール0.05～1.5重量%、融点20～100℃、150℃熱板上におけるゲル化時間が30～150秒の特性をもつ固形レゾール型フェノール樹脂が挙げられる。

同じく10μ～300μの人造グラファイトとしては石油コークス無煙炭から製造される10μ～300μの人造グラファイトで固定炭素量が95重量%以上のものが挙げられる。

次に組成物の配合割合についてのべると、固形レゾール型フェノール樹脂5～40重量%に10μ

～300μの人造グラファイト60～95重量%となる。

固形レゾール型フェノール樹脂5重量%未満では10μ～300μの人造グラファイトのペインダーとしての効果がなく機械的特性が低下して実用に適さなく40重量%以上では耐リソ酸性耐熱性に効果がない。10μ～300μの人造グラファイト60%未満では熱伝導性、電気伝導性に効果がなく95重量%を超えると機械的特性が低下し実用に適さない。

尚、最も好ましい範囲は、固形レゾール型フェノール樹脂15～30重量%、40μ～200μの人造グラファイト70～85重量%である。

本発明のインターコネクター用フェノール樹脂組成物は適当な粒度に粉碎された固形レゾール型フェノール樹脂と10μ～300μの人造グラファイトと必要に応じて離型剤、滑剤を加えて常温で混合し均一に分散させたのち蒸発性の液体分散媒を加えてスラリー状にし混練機で加熱混練する。その後、蒸発性の液体分散媒を揮散させたのち冷

却固化させ適当な粉碎機で適当な大きさに粉碎し成形材料とする。その後適当な温度に加熱された金型内で適当な圧力により硬化させて、インターコネクター用フェノール樹脂組成物をつくる。

このように本発明におけるインターコネクタ用フェノール樹脂組成物は熱伝導性、電気伝導性、耐リソ酸性、寸法安定性、耐熱性がすぐれている特徴がある。

以下、本発明の実施例を更に種々の実験結果を含めて具体的に説明する。

比較例 1.

ノボラック型フェノール樹脂(硬化剤としてヘキサメチレンテトラミン含)25重量%に40μ～200μの天然鱗片状グラファイト7.5重量%を常温で混合しメチルアルコールを加えてスラリー状にして100℃の混練機で加熱混練しメチルアルコールを揮散させたのち冷却粉碎した成形材料を160℃に加熱した金型内で200kg/cm²の圧力で5分間硬化させた組成物を得た。

この組成物を190℃85重量%のリン酸溶液で1週間浸漬処理を行つた結果浸漬前後の寸法変化率は+0.8%であり組成物に膨潤が見られリン酸溶液も黒く渋り熱リン酸溶液に犯され実用に適するものではなかつた。

比較例2.

固体レゾール型エノール樹脂4重量%に8μ以下の人造グラファイト96重量%を常温で混合しメチルアルコールを加えてスラリー状にして100℃の混練機で加熱混練しメチルアルコールを揮散させたのち冷却粉砕した成形材料を160℃に加熱した金型内で200kg/cm²の圧力で5分間硬化させた組成物を得た。

比較例1と同条件でリン酸処理を行つた結果浸漬前後の寸法変化率は-0.01%と安定した数値を示したがこの組成物の曲げ強さを測定すると2kg/cm²と実用に適さない強度であつた。

本発明の実施例1.

固体レゾール型エノール樹脂2.5重量%に40μ～200μの人造グラファイト7.5重量

コネクタ用エノール樹脂組成物を得た。この組成物の熱伝導率を測定すると25Kcal/m·hr·deg，電気伝導率を測定すると110cm⁻¹，比較例1と同条件でリン酸処理を行つた結果浸漬前後の寸法変化率は-0.01%，又曲げ強さを測定すると8.0kg/cm²といずれもすぐれた数値を示した。

以上、説明したように、本発明によればレゾール型エノール樹脂と10～300μの人造グラファイトを混合、混練、成形して得られる組成物によりインターコネクタを構成するようにしたので、190℃～200℃の高温状態においても安定であり、電気伝導性、熱伝導性、耐リン酸性、耐熱性、寸法安定性がすぐれ、且つこれをインターコネクターとして燃料電池に組むことによりオーム降下による効率低下を防止でき、温度分布の均一化が改善され、安定した発電特性を示す長寿命化の図れる燃料電池を提供できる。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例による燃料電池の單

特開昭58-53167(4)

%を常温で混合しメチルアルコールを加えてスラリー状にして100℃の混練機で加熱混練しメチルアルコールを揮散させたのち冷却粉砕した成形材料を160℃に加熱した金型内で200kg/cm²の圧力で5分間硬化させて、インターコネクター用エノール樹脂組成物を得た。この組成物の熱伝導率を測定すると20Kcal/m·hr·deg電気伝導率を測定すると、90cm⁻¹、比較例1と同条件でリン酸処理を行つた結果、浸漬前後の寸法変化率は-0.01%，又曲げ強さを測定すると7.0kg/cm²といずれもすぐれた数値を示した。

本発明の実施例2.

固体レゾール型エノール樹脂1.5重量%に100μ～200μの人造グラファイト85重量%を常温で混合しメチルアルコールを加えてスラリー状にして100℃の混練機で加熱混練しメチルアルコールを揮散させたのち冷却、粉砕した成形材料を160℃に加熱した金型内で200kg/cm²の圧力で5分間硬化させたインタ

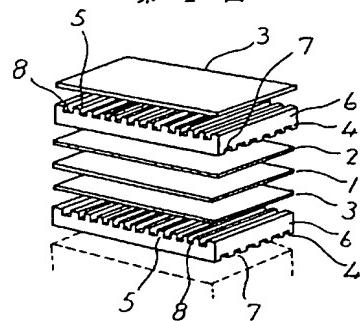
位セルを示す分解斜視図、第2図は同セルを組み込んだ燃料電池装置の斜視図である。

1……マトリックス 2,3…置極
4,5…リブ 6…インタコネクタ

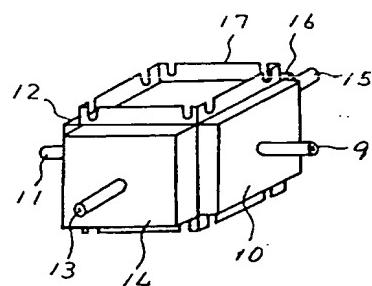
(7317) 代理人弁理士 関近康佑 (ほか1名)

特開昭58- 53167(5)

第 1 図



第 2 図



BEST AVAILABLE COPY